

RF スパッタ法を用いた Fe_2VAl 系熱電材料の薄膜化Development of Fe_2VAl -based thermoelectric films by means of RF-sputtering technique名大エコトピア¹, 名大工², JST さきがけ² ○竹内 恒博^{1,2,3}, 古田 幸大²ESI, Nagoya Univ.¹, Dept. Cryst. Mat. Sci., Nagoya Univ.², JST-PRESTO³○Tsunehiro Takeuchi^{1,2,3}, Yukihiro Furuta²

E-mail: takeuchi@nuap.nagoya-u.ac.jp

Fe_2VAl 系熱電材料は 300~500 K の低温域において $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$ を越える出力因子を示すことが知られている. [1]さらに, 耐酸化性や機械特性に優れているため, 繰り返し熱負荷や振動などが作用する過酷な使用用途でも利用可能な実用的熱電材料となることが期待されている. しかし, 比較的単純な構造と強い原子間力に關係する高いデバイ温度に起因して, 格子熱伝導度が大きく, 結果として, Fe_2VAl 系熱電材料の無次元性能指数 ZT は小さな値に留まっている. 近年, Fe_2VAl 系熱電材料では, 薄膜により熱伝導度が著しく低下することが報告された. [2] Fe_2VAl 系熱電材料の格子熱伝導度が薄膜化により低下する原因は未だ理解されておらず, この原因を明らかにすることは Fe_2VAl 系熱電材料の高性能化の観点からも, また, 一般的な熱電材料を高性能化する観点からも重要であると考えられる. また, 一般的に, 格子熱伝導度を低減させるためには, 光学的フォノンを低エネルギー化させることが有効である. 低エネルギーにある光学的フォノン分枝は, ウムクラップ散乱の確率を増大させるとともに, フォノンの平均群速度を著しく低下させるからである. 質量の異なる 2 つの合金を用いて超格子化すれば, フォノン分散の折畳み効果により, 光学的フォノンの低エネルギー化が可能になる. 超格子化を目指すのであれば, 表面平坦性が高く, かつ, エピタキシャル成長する薄膜作製技術の確立が必要になるであろう.

上述した観点から, 本研究では, RF スパッタ法を利用して Fe_2VAl 系熱電材料の薄膜試料を作製し, その熱電物性を評価した. 作製したスパッタ膜については, 薄膜用 X 線回折装置により構造を評価し, EDX および EPMA により組成を分析した. また, 比抵抗及びゼーベック係数は, それぞれ, 4 端子法と定常法を用いて, 2~600 K の温度領域で測定した. 熱伝導度は, パルスレーザ・サーモリフレクタンス法を用いて室温において評価した.

基板として MgO と MgAl_2O_4 を用いて, 薄膜を作製したところ, エピタキシャル成長膜を得ることに成功した. 膜の組成は, ターゲット上に単体元素の小片を置くことで微調整した. 現状で, 性能が最も良くなる組成の作製には成功していないが, 作製した厚膜試料 (厚さ 800~1000 nm) で観測される電子物性は, バルク材料とほぼ同程度あることを確認した. 一方, 熱伝導度は $2\sim4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 程度にまで低下していることが判明した. この値からは, 最適組成において, 無次元性能指数が $ZT > 0.8$ になる可能性が示唆される.

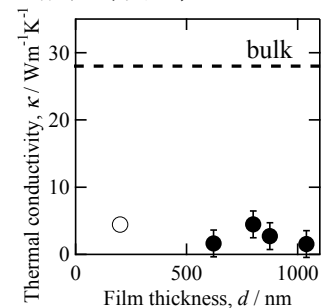
[1] Y. Nishino *et al.*, PRB **74** (2006) 115115.[2] A. Nishide *et al.*, J. Jpn. Inst. Metals, **76** (2012) 541.

図 1 Fe_2VAl 系薄膜材料の室温熱伝導度. 白丸は[文献 2]で報告された値を, 黒丸は本研究で測定した値を, 破線はバルク材料の値を示している.